

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-014322

(43)Date of publication of application : 15.01.2004

(51)Int.Cl.

H01M 8/24

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 2002-166884

(71)Applicant : NEC CORP

(22)Date of filing : 07.06.2002

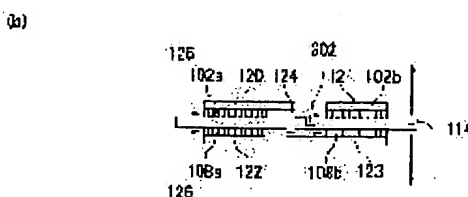
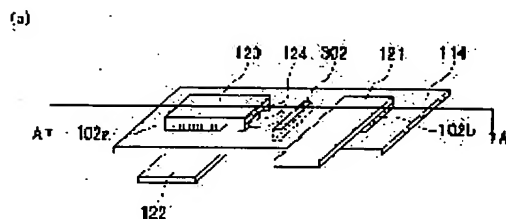
(72)Inventor : KIMURA HIDEKAZU
 WATANABE HIDE
 YOSHITAKE TSUTOMU
 KUROSHIMA SADANORI
 NAKAMURA ARATA
 SHIMAKAWA YUICHI
 MASAKO TAKASHI
 IMAI HIDEITO
 KUBO YOSHIMI

(54) LIQUID FUEL FEED TYPE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a miniaturized and thinned liquid fuel feed type fuel cell having a simple structure and high output.

SOLUTION: A plurality of unit cells are composed by sandwiching a solid polymer electrolyte film 114 by fuel electrodes 102a and 102b disposed on one surface of the electrolyte film 114 and oxidizer electrodes 108a and 108b disposed on the other surface thereof. This fuel cell having high output is realized by serially connecting the unit cells by a connection electrode 124 penetrating the electrolyte film 114. By forming a slot part 302 in a region between the unit cells on the electrolyte film 114, movement of hydrogen ions to the adjacent unit cells is restrained to prevent voltage drop.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

12.08.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3693039

[Date of registration]

01.07.2005

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-14322

(P2004-14322A)

(43) 公開日 平成16年1月15日 (2004.1.15)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 M 8/24	H 0 1 M 8/24	5 H 0 2 6
H 0 1 M 8/02	H 0 1 M 8/02	
H 0 1 M 8/10	H 0 1 M 8/10	

審査請求 有 請求項の数 12 O L (全 16 頁)

(21) 出願番号	特願2002-166884 (P2002-166884)	(71) 出願人	000004237
(22) 出願日	平成14年6月7日 (2002.6.7)		日本電気株式会社
			東京都港区芝五丁目7番1号
		(74) 代理人	100110928
			弁理士 運水 進治
		(72) 発明者	木村 英和
			東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株
			式会社内
		(72) 発明者	渡辺 秀
			東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株
			式会社内
		(72) 発明者	吉武 務
			東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株
			式会社内

最終頁に続く

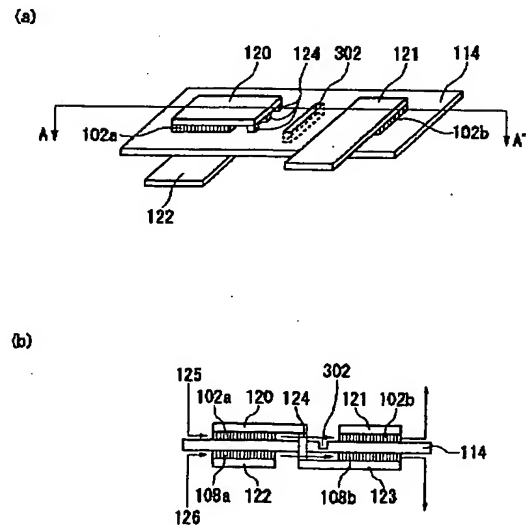
(54) 【発明の名称】 液体燃料供給型燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 簡素な構造を有し、高出力かつ小型化・薄型化された液体燃料供給型燃料電池を提供する。

【解決手段】 固体高分子電解質膜 114 の一方の面に配置された燃料極 102 a、b と、他方の面に配置された酸化剤極 108 a、b とが固体高分子電解質膜 114 を挟み付けることにより複数の単位セルを構成する。この単位セルを、固体高分子電解質膜 114 を貫通する接続電極 124 により直列に接続することにより高出力の燃料電池を実現する。また、固体高分子電解質膜 114 上における単位セル間の領域に、溝部 302 を設けることにより、隣接する単位セルへの水素イオンの移動を抑制し、電圧降下を防止することができる。

【選択図】 図 2



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

固体電解質膜と、該固体電解質膜の一方の面に配置された複数の燃料極と、該固体電解質膜の他方の面に前記複数の燃料極と対向して配置された複数の酸化剤極と、を含み、前記燃料極、前記酸化剤極および固体電解質膜により構成された複数の単位セルが電氣的に接続されてなる液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記固体電解質膜を貫通する導電部材をさらに備え、前記複数の単位セルのうち少なくとも二つの単位セルが、該導電部材を介して直列に接続されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 3】

請求項 2 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記導電部材と前記固体電解質膜との間に挟まれたシール材をさらに備えたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 4】

請求項 2 または 3 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記導電部材の表面が、絶縁性を有する材料によりコーティングされたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 5】

請求項 1 乃至 4 いずれかに記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記固体電解質膜上における前記単位セル間の領域に、低イオン伝導性領域がさらに設けられたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 6】

請求項 5 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記低イオン伝導性領域が、前記固体電解質膜に溝部が形成されてなる領域であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 7】

請求項 6 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記溝部に絶縁性樹脂が充填されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 8】

請求項 5 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記低イオン伝導性領域が、前記固体電解質膜に凹部が形成されてなる領域であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 9】

請求項 8 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記凹部に絶縁性樹脂が充填されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 10】

請求項 7 または 9 に記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記絶縁性樹脂が、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、フェノール系樹脂、エポキシ系樹脂のいずれかであることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 11】

請求項 1 乃至 10 いずれかに記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記複数の燃料極を覆った燃料流路をさらに備え、該燃料流路の隔壁の一部が前記固体電解質膜であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【請求項 12】

請求項 1 乃至 11 いずれかに記載の液体燃料供給型燃料電池において、前記複数の単位セルのうち、少なくとも二つの単位セルが並列に接続されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池。

【発明の詳細な説明】**【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、液体燃料を燃料極へ直接供給しながら発電する燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

液体燃料供給型燃料電池は、パーフルオロスルホン酸膜等のイオン交換膜を電解質とし、このイオン交換膜の両面に燃料極および酸化剤極の各電極を接合して構成され、燃料極に水素、酸化剤極に酸素あるいは空気を供給して電気化学反応により発電する装置である。この反応を起こすために、通常、液体燃料供給型燃料電池は、イオン交換膜と、その両面に形成される触媒物質が担持された炭素微粒子と固体高分子電解質との混合体からなる触媒層と、燃料および酸化ガスの供給と拡散を目的とする多孔質性炭素材料からなるガス拡散層（供給層）と、炭素あるいは金属の導電性薄板からなる集電体とで構成されている。

【0003】

上記の構成において、燃料極に供給された燃料は、拡散層（供給層）中の細孔を通過して触媒に達し、触媒により燃料が分解されて、電子と水素イオンが生成される。電子は電極中の触媒担体とガス拡散層（供給層）とを通過して外部回路へ導き出され、外部回路より酸化剤極に流れ込む。一方、水素イオンは電極中の電解質および両電極間の固体高分子電解質膜を通過して酸化剤極に達し、酸化剤極に供給された酸素と外部回路より流れ込む電子と反応して水を生じる。この結果、外部回路では燃料極から酸化剤極へ向かって電子が流れ、電力が取り出される。

【0004】

しかしながら、この基本的構成の固体高分子型燃料電池単体の電池電圧は、各電極における酸化還元電位差に相当することから、理想的な開放電圧であっても高々1.23Vである。このため、様々な機器に搭載する駆動電源としては電池出力に関し、必ずしも充分とは言えない。例えば、携帯用機器の駆動電源に燃料電池を使用する場合、それらの機器の多くは電源として1.5～4V程度以上の入力電圧を必要とする。このため、単位セルを直列に接続し、電池の電圧を上げる必要がある。

【0005】

そこで、電池電圧を上昇させるために、単位セルを積層することにより充分な電圧を確保することが考えられるが、このようにすると電池全体が厚みを帯びることから、薄型化が要請される携帯機器などの駆動電源としては好ましいとは言えない。

【0006】

電池の薄型化を実現する技術として、例えば特開平8-273696号公報には、同一平面状に複数のセルを組み込んだ燃料電池とこの燃料電池を複数枚重ねるスタック構造が開示されている。

【0007】

また、特開平8-171925号公報、特開2002-110215号公報には、一枚の電解質膜の一方の面側に複数の酸化剤電極が配置され、当該電解質膜の他方の面側に複数の燃料電極が配置されることにより、複数の単位セルを同一平面上に有する燃料電池が開示されている。

【0008】

上記公報の技術は、複数のセル間を電氣的に接続することにより高出力化が可能であるので、機器駆動のための電源電圧を得るという点において一定の効果を奏している。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、特開平8-273696号公報に記載の技術においては、平面内の配された各単位セルの燃料極と酸化剤極の向きは共通ではないため、各単位セル毎に燃料および酸化剤ガスを供給する必要がある。また、各単位セル内の燃料または酸化剤ガスが隣接する単位セルに流入することを防ぐため、密閉性を有する保持機構を必要とする。このため、燃料電池セル間隔は、燃料・酸化剤ガス供給機構や保持機構の大きさに依存し、充分な小型化を達成することが難しかった。さらに、構成部品数が多くなるなど、小型化およびコストの面から改善の余地を有していた。

【0010】

また、特開平8-171925号公報に記載の技術においては、ある単位セルの燃料極において生成した水素イオンが、その単位セルの酸化剤極ではなく、隣接する単位セルの酸化剤極へ移動し（電氣的リーク）、電圧が低下してしまうという課題を有していた。特に、各単位セルの間隔を電解質膜の厚さと同程度まで接近させる場合は、電氣的リークが顕著となり、電圧の低下が避けられなかった。

【0011】

また、特開2002-110215号公報に記載のスルーホール接続方式においては、上記した酸化剤極へ電氣的リークに加え、スルーホール内に挿通された導電部材へ水素イオンが移動することによる電氣的リークも生じるという課題を有している。この技術の場合も、特に、各単位セルの間隔を接近させるほど、電氣的リークおよび電圧の低下が顕著となる。

【0012】

上記事情に鑑み、本発明は、簡素な構造を有し、高出力かつ小型化・薄型化された液体燃料供給型燃料電池を提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決する本発明によれば、固体電解質膜と、当該固体電解質膜の一方の面に配置された複数の燃料極と、当該固体電解質膜の他方の面に上記複数の燃料極と対向して配置された複数の酸化剤極と、を含み、上記燃料極、上記酸化剤極および固体電解質膜により構成された複数の単位セルが電氣的に接続されてなる液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0014】

本発明における液体燃料供給型燃料電池とは、液体燃料を燃料極に直接供給しながら発電する燃料電池をいう。ダイレクトメタノール型燃料電池は、液体燃料供給型燃料電池の一形態である。

【0015】

本発明の液体燃料供給型燃料電池は、一枚の固体電解質膜を共有した複数の単位セルが電氣的に接続されることにより構成されている。このため、単位セル同士を保持・固定する部材を必要としないため、簡素な構造で高出力が得られる燃料電池が実現する。

【0016】

さらに、上記固体電解質膜の一方の面には燃料極が、他方の面には酸化剤極が配置されているため、各単位セル毎に燃料あるいは酸化剤を供給する流路などを設ける必要がなく、上記複数の単位セルに対し一挙に燃料あるいは酸化剤を供給することが可能である。したがって、機構を簡素化することができるため、燃料電池の小型化を図ることが可能となる。

【0017】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記固体電解質膜を貫通する導電部材をさらに備え、上記複数の単位セルのうち少なくとも二つの単位セルが、当該導電部材を介して直列に接続されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0018】

このようにすることにより、投影面積を増やすことなく単位セルを直列に接続することが可能となる。したがって、電池全体を一層小型化することができる。

【0019】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記導電部材と上記固体電解質膜との間に挟まれたシール材をさらに備えたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0020】

上記導電部材と上記固体電解質膜との間に間隙が存在する場合、燃料と酸化剤が混合して

しまうことから、燃料が空費される。本発明によれば、上記導電部材と上記固体電解質膜とが形成する間隙を完全に塞ぐことができるため、燃料の空費を抑制することができる。

【0021】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記導電部材の表面が、絶縁性を有する材料によりコーティングされたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0022】

上記導電部材と単位セルが接近して設けられる場合、当該単位セルの燃料極で生じた水素イオンが酸化剤極へ向かわずに、導電部材へ移動することが起こりうる。これが生じると、上記の電氣的リークと同様に電圧の低下を招く。そこで、本発明では、上記導電部材の表面を絶縁性を有する材料によりコーティングすることにより、水素イオンの導電部材への移動を防止することができ、電圧の低下を抑制することが可能となる。

【0023】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記固体電解質膜上における上記単位セル間の領域に、低イオン伝導性領域がさらに設けられたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0024】

本発明の燃料電池においては、各単位セル同士の間隔を狭めることにより、さらに燃料電池の小型化を図ることができる。しかしながら、このような場合、上記したように電氣的リークが生じることから、電圧が低下してしまうという課題が生じる。

【0025】

そこで本発明の燃料電池においては、固体電解質膜上における単位セル間の領域に、低イオン伝導性領域を設けることにより、上記電氣的リークが生じることを防止している。このため、各単位セルの間隔を、固体電解質膜の厚さと同程度とした場合においても電圧の低下が抑制されるため、小型かつ薄型で高出力の燃料電池が実現する。ここで、本発明における低イオン伝導性領域とは、他の領域と比較して、水素イオンの伝導性が低い領域をいう。

【0026】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記低イオン伝導性領域が、上記固体電解質膜に溝部が形成されてなる領域であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記低イオン伝導性領域が、上記固体電解質膜に凹部が形成されてなる領域であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0027】

このような構成とすることにより低イオン伝導性領域を設けることができ、固体電解質膜を介した単位セル間の水素イオンの移動を抑制することができるため、電圧低下が効果的に抑制された高出力の燃料電池が実現する。

【0028】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記溝部に絶縁性樹脂が充填されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記凹部に絶縁性樹脂が充填されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0029】

上記溝部あるいは凹部を絶縁性樹脂によって充填することにより、固体電解質膜を介した単位セル間の水素イオンの移動をより一層抑制することが可能となり、出力の一層高い燃料電池を得ることが可能となる。

【0030】

上記絶縁性樹脂としては、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、フェノール系樹脂、エポキシ系樹脂のいずれかを用いることが好ましい。これらの樹脂を用いることにより、上記溝部または凹部に対し、簡便かつ確実に絶縁性樹脂を充填することができる。

【0031】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記複数の燃料極を覆った燃料流路をさらに備え、当該燃料流路の隔壁の一部が上記固体電解質膜であることを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0032】

本発明の燃料電池は、上記固体電解質膜を燃料流路の隔壁の一部として利用しているため、構成部品数が少なく、構造が簡素である。このため、燃料電池全体の小型化・薄型化に寄与することができる。

【0033】

また本発明によれば、上記の液体燃料供給型燃料電池において、上記複数の単位セルのうち、少なくとも二つの単位セルが並列に接続されたことを特徴とする液体燃料供給型燃料電池が提供される。

【0034】

本発明の燃料電池においては、上記複数の単位セルを並列に接続することが可能であることから、所望の電圧または電流値を有する燃料電池を得ることが可能である。

【0035】

【発明の実施の形態】

以下、図2を参照して、本実施形態の燃料電池の構成および動作について説明する。

【0036】

図2(a)は、本実施形態の燃料電池の構造を模式的に表した斜視図であり、図2(b)は、図2(a)中のA-A'断面図である。図2(a)および(b)に示されるように、一枚の固体高分子電解質膜114の一方の面に燃料極102a、bが配され、固体高分子電解質膜114の他方の面には酸化剤極108a、bが配されている。また、燃料極102a、b上には集電体120、121が、酸化剤極108a、b上には集電体122、123が接続されている。また、集電体120および123は、固体高分子電解質膜114を貫通する接続電極124により電氣的に接続されている。なお、燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bは、図示しない基体および触媒層から構成される。

【0037】

以上のように構成された燃料電池において、図2(b)に示されるように、燃料極102a、bには燃料125が、酸化剤極108a、bには空気あるいは酸素などの酸化剤126が供給される。本実施形態の燃料電池においては、複数の単位セルの燃料極102a、b、酸化剤極108a、bがそれぞれ固体高分子電解質膜114を境にして同じ側に配されている。したがって、燃料を供給する燃料流路および酸化剤を供給する酸化剤流路はそれぞれ一系統で足りるため、燃料電池の構造を簡素化することが可能となる。ここで、固体高分子電解質膜114は、燃料極側と酸化剤極側を隔てる隔壁の役割を有していることから、燃料125が酸化剤極側に進入することはない、また酸化剤126が燃料極側に進入することもない。

【0038】

固体高分子電解質膜114は、燃料極102a、bと酸化剤極108a、bとを隔てるとともに、両者の間で水素イオンを移動させる役割を有する。このため、固体高分子電解質膜114は、水素イオンの導電性が高い膜であることが好ましい。また、化学的に安定であって機械的強度が高いことが好ましい。固体高分子電解質膜114を構成する材料としては、

スルホン基、リン酸基、ホスホン基、ホスフィン基などの強酸基や、カルボキシル基などの弱酸基などの極性基を有する有機高分子が好ましく用いられる。こうした有機高分子として、

スルホン化ポリ(4-フェノキシベンゾイル-1,4-フェニレン)、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子；

ポリスチレンスルホン酸共重合体、ポリビニルスルホン酸共重合体、架橋アルキルスルホン酸誘導体、フッ素樹脂骨格およびスルホン酸からなるフッ素含有高分子などの共重合体

；
アクリルアミドー2-メチルプロパンスルホン酸のようなアクリルアミド類とn-ブチルメタクリレートのようなアクリレート類とを共重合させて得られる共重合体；
スルホン基含有パーフルオロカーボン（ナフィオン（デュポン社製）、アシブレックス（旭化成社製））；

カルボキシル基含有パーフルオロカーボン（フレミオンS膜（旭硝子社製））；
などが例示される。

【0039】

上記スルホン化ポリ（4-フェノキシベンゾイル-1，4-フェニレン）、アルキルスルホン化ポリベンゾイミダゾールなどの芳香族含有高分子を選択した場合には、当該有機液体燃料の透過を抑制でき、クロスオーバーによる電池効率の低下を抑えることができる。

【0040】

燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bは、たとえば、触媒を担持した炭素粒子と固体高分子電解質の微粒子とを含む膜を基体上に形成した構成とすることができる。基体表面は撥水処理してもよい。

【0041】

基体としては、燃料極、酸化剤極ともにカーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属などの多孔性基体を用いることができる。また、基体の撥水処理にはポリテトラフルオロエチレンなどの撥水剤を用いることができる。

【0042】

燃料極の触媒としては、白金、白金、ロジウム、パラジウム、イリジウム、オスミウム、ルテニウム、レニウム、金、銀、ニッケル、コバルト、リチウム、ランタン、ストロンチウム、イットリウムなどが例示され、これらを単独または二種類以上組み合わせて用いることができる。一方、酸化剤極の触媒としては、燃料極の触媒と同様のものが用いることができ、上記例示物質を使用することができる。なお、燃料極および酸化剤極の触媒は同じものを用いても異なるものを用いてもよい。

【0043】

触媒を担持する炭素粒子としては、アセチレンブラック（デンカブラック（電気化学社製）、XC72（Vulcan社製）など）、ケッチェンブラック、カーボンナノチューブ、カーボンナノホーンなどが例示される。炭素粒子の粒径は、たとえば、0.01~0.1 μ m、好ましくは0.02~0.06 μ mとする。

【0044】

燃料125としては、メタノール、エタノール、ジエチルエーテルなどの有機液体燃料を用いることができる。

【0045】

燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bの作製方法は特に制限がないが、たとえば以下のようにして作製することができる。

【0046】

まず燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bの触媒の炭素粒子への担持は、一般的に用いられている含浸法によって行うことができる。次に、触媒を担持させた炭素粒子と固体高分子電解質粒子を溶媒に分散させ、ペースト状とした後、これを基体に塗布、乾燥させることによって燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bを得ることができる。ここで、炭素粒子の粒径は、たとえば0.01~0.1 μ mとする。また、触媒粒子の粒径は、たとえば1nm~10nmとする。また、固体高分子電解質粒子の粒径は、たとえば0.05~1 μ mとする。炭素粒子と固体高分子電解質粒子とは、たとえば、重量比で2:1~40:1の範囲で用いられる。また、ペースト中の水と溶質との重量比は、たとえば、1:2~10:1程度とする。基体へのペーストの塗布方法については特に制限がないが、たとえば、刷毛塗り、スプレー塗布、およびスクリーン印刷等の方法を用いることができる。ペーストは、約1 μ m~2mmの厚さで塗布される。ペーストを塗布し

た後、使用するフッ素樹脂に応じた加熱温度および加熱時間で加熱し、燃料極102a、bまたは酸化剤極108a、bが作製される。加熱温度および加熱時間は、用いる材料によって適宜に選択されるが、たとえば、加熱温度100℃～250℃、加熱時間30秒間～30分とすることができる。

【0047】

固体高分子電解質膜114は、用いる材料に応じて適宜な方法を採用して作製することができる。たとえば、固体高分子電解質膜114を有機高分子材料で構成する場合、有機高分子材料を溶媒に溶解または分散した液体を、ポリテトラフルオロエチレン等の剥離性シート等の上にキャストして乾燥させることにより得ることができる。

【0048】

固体高分子電解質膜114には、当該電解質膜を貫通するように接続電極124が設けられる。接続電極124は、後述する集電体120および123を電気的に接続するための導電部材である。接続電極124は、たとえば、固体高分子電解質膜114に予め貫通孔を設けておき、この貫通孔に挿通することができる。また、予め貫通孔を設けず、接続電極124を直接固体高分子電解質膜に突き刺し、貫通孔を設けつつ貫通させてもよい。

【0049】

ここで、固体高分子電解質膜114と接続電極124との隙間から燃料あるいは酸化剤が漏れることを防止するために、たとえば、当該貫通孔よりも幾分小さめの径の孔部を有するシール材を、その孔部と貫通孔を合わせて予め当該貫通孔上に載せておき、接続電極124をそのシール材の上から挿通することもできる。こうすることにより、貫通孔と接続電極124の隙間を完全に塞ぐことが可能となる。シール材としては、たとえばテトラフルオロエチレン樹脂製フィルムやシリコン製フィルムを使用することができる。

【0050】

以上のようにして作製した固体高分子電解質膜114を、燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bで挟み、ホットプレスし、電極-電解質接合体を得る。このとき、両電極の触媒が設けられた面と固体電解質膜とが接するようにする。ホットプレスの条件は、材料に応じて選択されるが、固体電解質膜や電極表面の電解質膜を有機高分子で構成する場合、これらの高分子の軟化温度やガラス転位温度を超える温度とすることができる。具体的には、例えば、温度100～250℃、圧力1～100kg/cm²、時間10秒～300秒とする。

【0051】

上記のようにして得られた電極-電解質接合体を、集電体120～123により挟持する。その後、固体高分子電解質膜114を貫通する接続電極124により、集電体120および123を電気的に接続する。こうすることにより、直列接続された燃料電池を得ることができる。接続電極124、集電体120および123の接続方法は特に限定されないが、例えば、接続電極124と集電体120あるいは123をかしめることにより接続したり、または溶接することにより接続することができる。なお、集電体120～123および接続電極124は導電性を有する部材であり、例えばステンレスやチタンなどを用いることができる。

【0052】

上記の説明においては、簡単のため、単位セルが二つの場合について説明したが、これに限られるものではなく、三つ以上の単位セルを用いた形態についても適用することができる。

【0053】

また、本実施形態の燃料電池においては、上記した従来技術における密閉性を有する保持機構を必要としないため、各単位セル同士を近付けて配置させ、省スペースを図ることにより、高密度実装を実現できる。

【0054】

しかしながら、各単位セル同士を固体高分子電解質膜114の厚さ程度まで近付けて配置させた場合には、ある単位セルの燃料極において生成した水素イオンが、その単位セルの

酸化剤極ではなく、隣接する単位セルの酸化剤極へ移動してしまうこと（電氣的リーク）が生じ得る。このように移動する水素イオンは電圧降下の原因となる。そこで本実施形態では、この電氣的リークを防止するため、単位セルと単位セルとの間の領域に溝加工を施している。また、図3のように穴加工を施すこともできる。

【0055】

図2(a)は、溝部302が設けられた形態の斜視図であり、図中のA-A'断面図が図2(b)である。また、図3(a)は、凹部303が設けられた形態の斜視図であり、図中のA-A'断面図が図3(b)である。溝部302または凹部303を設けることにより、燃料極102aで生成した水素イオンが隣接する単位セルの酸化剤極108bへ移動する際のイオン伝導性を降下させることができる。このため、電氣的リークを抑え、燃料極102aで生成した水素イオンを効果的に酸化剤極108aに導くことができる。さらに、溝部302または凹部303を絶縁性を有する樹脂などで充填することもできる。このような形態を図4、図5に示す。図4(a)は、溝部に絶縁性フィルム304が挟まれた形態の斜視図を示しており、図中のA-A'断面図が図4(b)である。また、図5(a)は、凹部に絶縁性樹脂305が充填された形態の斜視図を示しており、図中のA-A'断面図が図5(b)である。このような構成を採用することにより、電氣的リークをより一層抑制することが可能となる。

【0056】

なお、絶縁性フィルム304および絶縁性樹脂305としては、フッ素系樹脂、ポリイミド系樹脂、フェノール系樹脂、エポキシ系樹脂などの材料を用いることができる。

【0057】

上記より、図2～図5に示される実施の形態においては、燃料電池のセル間隔を固体高分子電解質膜の膜厚以下とすることができるため、より高密度な実装を実現することができる。

【0058】

また、上記の電氣的リークは、水素イオンが接続電極124へ移動することによっても生じる。これを防止するために、接続電極124の表面を絶縁性を有する材料でコーティングすることが好ましい。絶縁性を有する材料としては、シリコン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリエチレン、ポリイミド系の材料が例示され、これを例えば蒸着法を用いてコーティングすることができる。

【0059】

【実施例】

(実施例1)

図1を参照して、本実施例について説明する。

【0060】

触媒には炭素微粒子（デンカブラック；電気化学社製）に粒子径3～5nmの白金（Pt）-ルテニウム（Ru）合金を重量比で50%担持させた触媒担持炭素微粒子を使用した。なお、合金組成は50at%Ruで、合金と炭素微粉末の重量比は1:1とした。この触媒担持炭素微粒子1gにアルドリッチ・ケミカル社製5wt%ナフィオン溶液18mlを加え、50℃にて3時間超音波混合機で攪拌し触媒ペーストとした。このペーストをカーボンペーパー（東レ製：TGP-H-120）上にスクリーン印刷法で2mg/cm²塗布し、120℃で乾燥させて電極を得た。

【0061】

固体高分子電解質膜114（デュボン社製ナフィオン（登録商標）、膜厚150μm）に、後述の接続電極124を挿通するための貫通孔を設けた。この固体高分子電解質膜114に対し、上記で得た電極を120℃で熱圧着して燃料極102および酸化剤極108とし、二組の単位セルを作成した。なお、この二つの単位セルの間隔は2.5mmとした。

【0062】

上記二つの単位セルをステンレス製の集電体120～123で挟持した。さらに、集電体120および集電体123を、テトラフルオロエチレン樹脂によりコーティングを施した

ステンレス製のM2ボルトである接続電極124を用い、上記貫通孔に挿通させつつ直列に接続した。ここで、接続電極124を上記貫通孔に挿通させる際には、テトラフルオロエチレン樹脂からなるシール材306を上記貫通孔上に載せた状態で挿通させ、図示されるように貫通孔を完全に塞いだ。

【0063】

さらに、テトラフルオロエチレン樹脂製の燃料容器を燃料極102側に取り付けた。二つの燃料極102は、この燃料容器に覆われ、かつ固体高分子電解質膜114とこの燃料容器とで密閉された状態となるようにした。

【0064】

この燃料電池の内部に10%メタノール水溶液を2ml/minで流し、外部を大気中に曝して電池特性を測定したところ、電流密度100mA/cm²時の電池電圧が0.9Vであった。この電圧は、一つの単位セルで測定した場合の2倍の電圧に相当することから、二つの単位セルが直列接続されていることが確認された。

【0065】

上記実施例1においては、単位セル間に十分な間隔を確保しているため、電氣的リークがほとんど生じず、良好な結果が得られている。ところが、単位セル間の間隔を固体高分子電解質膜の厚さと同程度まで狭めると、電氣的リークが顕著となることから、電圧降下が生じる。

【0066】

以下に、単位セル間の間隔を固体高分子電解質膜の厚さと同程度まで狭めつつ、上記実施例と同等の性能を有する実施例を示す。

【0067】

(実施例2)

図2を参照して本実施例について説明する。

【0068】

触媒には炭素微粒子（デンカブラック；電気化学社製）に粒子径3～5nmの白金（Pt）-ルテニウム（Ru）合金を重量比で50%担持させた触媒担持炭素微粒子を使用した。なお、合金組成は50at%Ruで、合金と炭素微粉末の重量比は1:1とした。この触媒担持炭素微粒子1gにアルドリッチ・ケミカル社製5wt%ナフィオン溶液18mlを加え、50℃にて3時間超音波混合機で攪拌し触媒ペーストとした。このペーストをカーボンペーパー（東レ製：TGP-H-120）上にスクリーン印刷法で2mg/cm²塗布し、120℃で乾燥させて電極を得た。

【0069】

次に、固体高分子電解質膜114（デュボン社製ナフィオン（登録商標）、膜厚150μm）に、表面をテトラフルオロエチレン樹脂によりコーティングした直径0.05mmの金製のワイヤーである接続電極124を挿通させた。

【0070】

この固体高分子電解質膜114に対し、上記で得た電極を120℃で熱圧着して燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bとし、二組の単位セルを作成した。なお、この二つの単位セルの間隔は0.2mmとした。さらに、この二つの単位セルの間に、幅0.05mm、深さ0.1mmの溝部302を設けた。

【0071】

上記二つの単位セルをステンレス製の集電体120～123で挟持した。さらに、集電体120および集電体123を接続電極124を介して直列に接続した。接続は超音波振動による熱圧着により行った。

【0072】

さらに、テトラフルオロエチレン樹脂製の燃料容器を燃料極側に取り付けた。燃料極102a、bは、この燃料容器に覆われ、かつ固体高分子電解質膜114とこの燃料容器とで密閉された状態となるようにした。

【0073】

なお、本実施例においては、溝部302を接続電極124の右側に設けた例について説明したが、溝部302を接続電極124の左側に設けてもよい。また、溝部302を接続電極124が貫通する形態を採ることもできる。

【0074】

(実施例3)

図4を参照して本実施例について説明する。

【0075】

本実施例における固体高分子電解質膜114は、図2における固体高分子電解質膜114上に設けられた溝部302に、ポリイミドからなる絶縁性フィルム304（デュボン社製カプトン（登録商標））を挟み、接着させたものである。その他の構成は実施例2と同様である。

【0076】

なお、図4には、溝部および絶縁性フィルム304を接続電極124の右側に配した例について示したが、溝部および絶縁性フィルム304を接続電極124の左側に設けた形態を採用することもできる。

【0077】

(比較例1)

本比較例における固体高分子電解質膜は、図2における固体高分子電解質膜114上に設けられた溝部302を設けないものであり、その他の構成は実施例2と同様である。

【0078】

実施例2、実施例3および比較例1の燃料電池の内部に10%メタノール水溶液を2ml/minで流し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果を表1に示した。

【0079】

【表1】

表1	
	電池電圧
実施例2	0.87V
実施例3	0.9V
比較例1	0.8V

【0080】

表中、電池電圧は電流密度100mA/cm²時のものである。比較例1の電池よりも実施例2の電池の方が電圧が高いのは、比較例1の電池において生じていた電気的リークが、固体高分子電解質膜114上に設けられた溝部302（図2）により抑制された結果であると考えられる。また、実施例3の電池電圧は実施例2よりもさらに高く、0.9Vを示した。この電圧は、燃料電池セル単体で測定した場合の2倍の電圧に相当することから、絶縁性フィルム304（図4）により電気的リークが完全に抑えられていることが確認された。

【0081】

上記より、実施例2および3の電池は、単位セルの間隔が0.2mmという極めて高密度な実装が可能であることが判明した。

【0082】

(実施例4)

図3を参照して本実施例について説明する。

【0083】

触媒には炭素微粒子（デンカブラック；電気化学社製）に粒子径3～5nmの白金（Pt）-ルテニウム（Ru）合金を重量比で50%担持させた触媒担持炭素微粒子を使用した。なお、合金組成は50at%Ruで、合金と炭素微粉末の重量比は1：1とした。この触媒担持炭素微粒子1gにアルドリッチ・ケミカル社製5wt%ナフィオン溶液18ml

を加え、50℃にて3時間超音波混合機で攪拌し触媒ペーストとした。このペーストをカーボンペーパー（東レ製：TGP-H-120）上にスクリーン印刷法で2mg/cm²塗布し、120℃で乾燥させて電極を得た。

【0084】

次に、固体高分子電解質膜114（デュボン社製ナフィオン（登録商標）、膜厚150μm）に、表面をテトラフルオロエチレン樹脂によりコーティングした直径0.05mmの金製のワイヤーである接続電極124を挿通させた。

【0085】

この固体高分子電解質膜114に対し、上記で得た電極を120℃で熱圧着して燃料極102a、bおよび酸化剤極108a、bとし、二組の単位セルを作成した。なお、この二つの単位セルの間隔は0.2mmとした。さらに、この二つの単位セルの間に、直径0.1mm、深さ0.1mmの凹部303を設けた。

【0086】

上記二つの単位セルをステンレス製の集電体120～123で挟持した。さらに、集電体120および集電体123を接続電極124を介して直列に接続した。接続は超音波振動による熱圧着により行った。

【0087】

さらに、テトラフルオロエチレン樹脂製の燃料容器を燃料極側に取り付けた。燃料極102a、bは、この燃料容器に覆われ、かつ固体高分子電解質膜114とこの燃料容器とで密閉された状態となるようにした。

【0088】

なお、本実施例においては、凹部303を接続電極124の右側に設けた例について説明したが、凹部303を接続電極124の左側に設けてもよい。また、凹部303を接続電極124が貫通する形態を採ることもできる。

【0089】

（実施例5）

図5を参照して本実施例について説明する。

【0090】

本実施例における固体高分子電解質膜114は、図3における固体高分子電解質膜114上に設けられた凹部303に、絶縁性樹脂305（エポキシ性樹脂）を充填したものである。その他の構成は実施例4と同様である。

【0091】

なお、図5においては、凹部および絶縁性樹脂305が接続電極124の右側に配された例について説明したが、凹部および絶縁性樹脂305が接続電極124の左側に配された形態を採用することもできる。また、接続電極124が、凹部および絶縁性樹脂305を貫通する形態を採ることもできる。

【0092】

実施例3、実施例4、凹部303（図3）や絶縁性樹脂305（図5）を有しない比較例1の燃料電池の内部に10%メタノール水溶液を2ml/minで流し、外部を大気中に曝して電池特性を測定した。その結果を表2に示した。

【0093】

【表2】

表2

	電池電圧
実施例4	0.85V
実施例5	0.9V
比較例1	0.8V

【0094】

表中、電池電圧は電流密度100mA/cm²時のものである。比較例1の電池よりも実施例3の電池の方が電圧が高いのは、比較例1の電池において生じていた電氣的リークが、固体高分子電解質膜上に設けられた凹部303（図3）により抑制された結果であると考えられる。また、実施例4の電池電圧は実施例3よりもさらに高く、0.9Vを示した。この電圧は、燃料電池セル単体で測定した場合の2倍の電圧に相当することから、絶縁性樹脂305（図5）により電氣的リークが完全に抑えられていることが確認された。

【0095】

上記より、実施例3および4の電池は、単位セルの間隔が0.2mmという極めて高密度な実装が可能であることが判明した。

【0096】

上記実施例においては、電氣的に直列に接続する例を示したが、二つのセルの燃料極（あるいは酸化剤極）どうしの間を接続することにより電氣的並列に接続することも可能である。また、電氣的に接続する単位セル数を増やすことによって電圧あるいは電流を高くすることが可能であり、接続方法を適宜選択することで電池出力を調整することが可能である。

【0097】

【発明の効果】

以上説明したように、本発明によれば、簡素な構造を有し、高出力かつ小型化・薄型化された液体燃料供給型燃料電池を提供することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の燃料電池の一例を示す図である。

【図2】本発明の燃料電池の一例を示す図である。

【図3】本発明の燃料電池の一例を示す図である。

【図4】本発明の燃料電池の一例を示す図である。

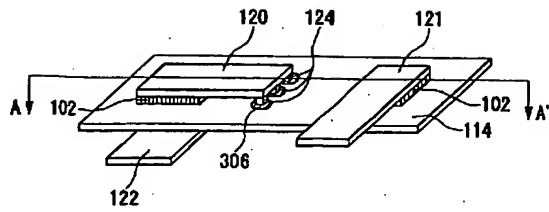
【図5】本発明の燃料電池の一例を示す図である。

【符号の説明】

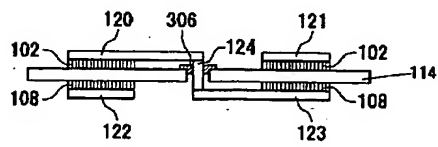
- 102、102a、102b 燃料極
- 108、108a、108b 酸化剤極
- 114 固体高分子電解質膜
- 120、121、122、123 集電体
- 124 接続電極
- 125 燃料
- 126 酸化剤
- 302 溝部
- 303 凹部
- 304 絶縁性フィルム
- 305 絶縁性樹脂
- 306 シール材

【図1】

(a)

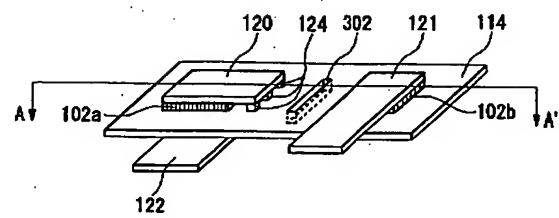


(b)

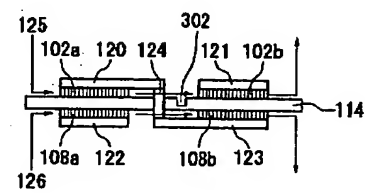


【図2】

(a)

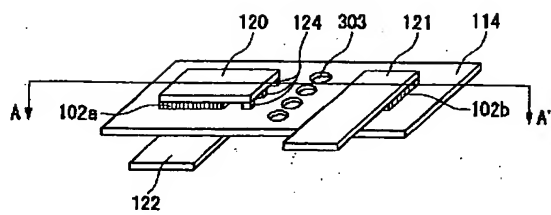


(b)

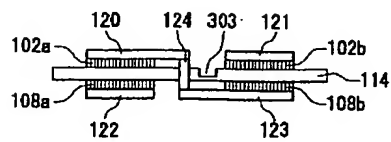


【図3】

(a)

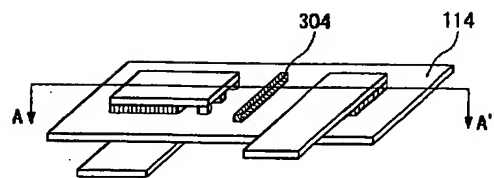


(b)

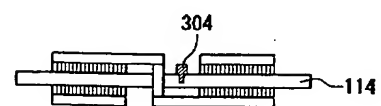


【図4】

(a)

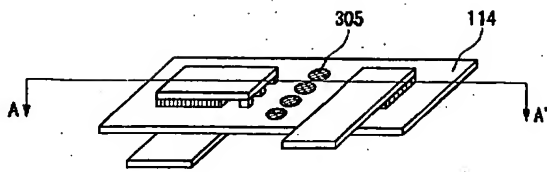


(b)

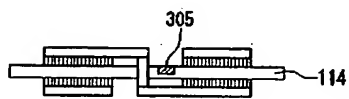


【図5】

(a)



(b)



フロントページの続き

- (72)発明者 黒島 貞則
東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
- (72)発明者 中村 新
東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
- (72)発明者 島川 祐一
東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
- (72)発明者 眞子 隆志
東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
- (72)発明者 今井 英人
東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
- (72)発明者 久保 佳実
東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内
- Fターム(参考) 5H026 AA08 CC03 CX05 EE18 EE19